

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **2003321551 A**

(43) Date of publication of application: **14.11.03**

(51) Int. Cl

C08J 3/21
C08J 3/20
C08K 3/00
C08K 3/34
C08L 7/02
C08L 9/00
C08L 23/22
F16J 15/10

(21) Application number: **2002130740**

(22) Date of filing: **02.05.02**

(71) Applicant: **BRIDGESTONE CORP**

(72) Inventor: **HAGIWARA ISAO**
TSUNODA KATSUHIKO
MASHITA SHIGEHIKO

**(54) PRODUCTION METHOD OF RUBBER
COMPOSITION AND RUBBER COMPOSITION**

(57) Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a rubber composition that has reduced gas permeability and a method of producing the same, and to provide a rubber composition and a method of producing the same that can be obtained with a simple apparatus through a shortened

drying time and with largely improved rolling operability.

SOLUTION: An emulsion of rubber (preferably butyl rubber) is mixed with an inorganic filler and the mixture is dried to give the rubber composition. In this case, the rubber emulsion is prepared by emulsifying a rubber solution in an organic solvent.

COPYRIGHT: (C)2004,JPO

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2003-321551

(P2003-321551A)

(43)公開日 平成15年11月14日 (2003.11.14)

| (51)Int.Cl. ⁷ | 識別記号 | F I | マークト ⁸ (参考) |
|--------------------------|------|-------------|------------------------|
| C 08 J 3/21 | CEQ | C 08 J 3/21 | CEQ 3 J 0 4 0 |
| 3/20 | | 3/20 | B 4 F 0 7 0 |
| C 08 K 3/00 | | C 08 K 3/00 | 4 J 0 0 2 |
| 3/34 | | 3/34 | |
| C 08 L 7/02 | | C 08 L 7/02 | |

審査請求 未請求 請求項の数 8 OL (全 6 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2002-130740(P2002-130740)

(22)出願日 平成14年5月2日(2002.5.2)

(71)出願人 000005278

株式会社ブリヂストン

東京都中央区京橋1丁目10番1号

(72)発明者 萩原 繁

神奈川県横浜市泉区岡津町2576-2

(72)発明者 角田 克彦

神奈川県藤沢市川名181-18 セントラル
ヴィングイースト1310

(74)代理人 100100354

弁理士 江藤 聰明

最終頁に続く

(54)【発明の名称】ゴム組成物の製造方法及びゴム組成物

(57)【要約】

【課題】 気体透過率が低減されたゴム組成物およびその製造方法、また、本発明は、簡易な装置を用いて、短い乾燥時間で得ることができ、かつその後のロール作業性が大幅に改善されたゴム組成物およびその製造方法を提供すること。

【解決手段】 ゴム(好ましくはブチルゴム)の乳化分散液と、無機フィラーとを混合し、乾燥することからなるゴム組成物の製造方法であって、ゴムの乳化分散液が、ゴム有機溶剤溶液を乳化した分散液であることを特徴とする製造方法、及びこの方法により得られるゴム組成物。

【特許請求の範囲】

【請求項1】ゴムの乳化分散液と、無機フィラーとを混合し、乾燥することからなるゴム組成物の製造方法であって、前記ゴムの乳化分散液が、ゴム有機溶剤溶液を乳化した分散液であることを特徴とする製造方法。

【請求項2】ゴムの乳化分散液が、ゴムを有機溶剤中に溶解したゴム溶液を、乳化剤含有水溶液中に、低級アルコールの存在下に分散し、有機溶剤及びアルコールを除去することにより得られる分散液である請求項1に記載の製造方法。

【請求項3】ゴムが、アクリロニトリルゴム、スチレンゴム、ブチルゴムまたは天然ゴムである1又は2に記載の製造方法。

【請求項4】ゴムが、ブチルゴムである請求項1～3のいずれかに記載の製造方法。

【請求項5】無機フィラーが、クレーである請求項1～4のいずれかに記載の製造方法。

【請求項6】無機フィラーをその水スラリーとして使用する請求項1～5のいずれかに記載の製造方法。

【請求項7】クレーのゴムに対する含有量が、5～50質量%の範囲にある請求項5又は6記載の製造方法。

【請求項8】請求項1～7のいずれかに記載の方法により得られるゴム組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、ホース、ガスケット、パッキング材などに有用なクレー含有ゴム組成物及びその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】ゴムにクレー等の無機フィラーを配合することは、従来からガスバリヤ性等の向上を目的として行われている。このようにゴムに、例えばクレーを分散させる方法は、種々知られている。

【0003】例えば、(1)クレーを4級アンモニウム塩などの界面活性剤を用いて有機化処理した「有機化クレー」と、半固体状のゴムを有機溶媒に一旦溶解したものを、充分混合した後に有機溶媒を乾燥させてゴム／クレー配合物を得る「有機化クレー／有機溶媒法」が知られている(特開平1-198645号公報)。この方法には以下のような欠点がある。即ち、クレーの有機化処理に多数の工程が必要であり、有機溶媒中に有機化クレーが良好に分散するときとしないときがあり、ばらつきが大きい。

【0004】(2)「有機化クレー」と半固体状のゴムとを、二軸混練機などの高温高せん断型ミキサーを用いて混合することにより、ゴム／クレー配合物を得る「有機化クレー／高せん断ミキサー法」は、(1)と同様にクレーの有機化処理に多数の工程が必要であり、さらに、ゴム／クレーの分散状態は、二軸混練中のせん断力だけに依存するため、分散性にばらつきがある、二軸混

練機などの大型で高額な設備を必要とする、二軸混練機中に残った原材料は廃棄処理されるので、材料のロスが大きいという欠点を持つ。

【0005】(3)有機化処理されていないクレー(未処理クレー)を水に浸漬して得られるクレー／水スラリーとゴム又はポリマーとを、高温高せん断型ミキサーを用いて混合し、水を混合中に気化脱水することによりゴム／クレー配合物を得る「クレー水スラリー／高せん断型ミキサー法」(例、特開2000-239397号公報)も知られている。この方法では、有機溶剤は使用されないが、水スラリーを高温の二軸混練機へ注入する設備が必要であること、二軸混練機などの大型で高額な設備を必要とすること、二軸混練機中に残った原材料は廃棄処理されるので、材料のロスが大きいこと等の欠点がある。

【0006】(4)クレー水スラリーと、ラテックスとを混合することにより得られるラテックス／クレー水スラリーを乾燥させてゴム／クレー配合物を得る「ラテックス／クレー水スラリー法」も知られている。この方法では、有機溶剤は使用されず、クレー水スラリーとラテックスの混合は容易であり、条件をうまく設定すればかなり広範囲の混合条件においても良好な分散状態のゴム／クレー配合物が得られる。しかし、水溶液で大量の水が存在するため、乾燥に大面積で底の浅い容器が必要となる、乾燥に時間がかかるという欠点を有する。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】クレー等の無機フィラーは、気体遮蔽性(ガスバリヤ性)の向上、即ちガス透過率の低減化、或いは機械的特性の向上のためゴム或いはポリマーに一般に添加されている。しかしながら、上記のクレー含有ゴム組成物においては、クレーの微分散、均一分散が充分でない場合があり、クレーが含有しているにもかかわらず気体透過率が充分に低下していない。また(3)、(4)のように比較的低い気体透過率が得られる場合でも、クレーの分散が充分とは言えず、乾燥時間、その後のロール作業性が充分に満足できるレベルにないとの問題があった。さらに、クレーの含有量が多すぎるため、透明性、耐衝撃性等が低下するとの問題があった。

【0008】本発明は、これらの従来技術の欠点を克服し、気体透過率が低減されたゴム組成物およびその製造方法を提供することを目的とする。

【0009】また本発明は、透明性、優れた機械特性を有し、そして気体透過率が低減されたゴム組成物およびその製造方法を提供することを目的とする。

【0010】さらにまた、本発明は、簡易な装置を用いて、短い乾燥時間で得ることができ、かつその後のロール作業性が大幅に改善されたゴム組成物およびその製造方法を提供することを目的とする。

【0011】

【課題を解決するための手段】本発明は、ゴムの乳化分散液と、無機フィラーとを混合し、乾燥することからなるゴム組成物の製造方法であって、ゴムの乳化分散液が、ゴム有機溶剤溶液を乳化した分散液であることを特徴とする製造方法にある。

【0012】上記製造方法において、ゴムの乳化分散液が、ゴムを有機溶剤中に溶解したゴム溶液を、乳化剤含有水溶液中に、低級アルコールの存在下に分散し、有機溶剤及び有機溶剤を除去することにより得られる分散液が好ましい。さらにゴムの微分散が可能となる。さらに低級アルコールは乳化剤含有水溶液中に含まれていることが好ましい。

【0013】無機フィラーとしては、クレー、マイカ、カオリンクレー、タルク、炭酸カルシウム、シリカ等を挙げることができ、中でも形状が扁平状であるクレー、マイカ、カオリンクレー、タルクが好ましく、特にクレーが好ましい。クレーの中でもナトリウムーモンモリロナイトが好ましい。無機フィラーを水スラリーとして使用することが好ましい。特にクレーを使用する場合には好ましい。

【0014】ゴムが、アクリロニトリルーブタジエンゴム、スチレンブタジエンゴム、ブチルゴムまたは天然ゴムであり、特にブチルゴムであることが好ましい。

【0015】クレーのゴムに対する含有量が、5～50質量%の範囲、特に5～30質量%の範囲にあることが好ましい。

【0016】本発明は、また、上記の方法により得られるゴム組成物にもある。

【0017】

【発明の実施の形態】本発明の方法は、ゴムの乳化分散液と、クレー等の無機フィラー（好ましくはその水スラリーとして）とを混合し、乾燥することを基本構成とするゴム組成物の製造方法である。そして使用されるゴムの乳化分散液は、ゴム有機溶剤溶液を乳化した分散液であることを特徴としており、天然のゴムラテックス或いは乳化重合により得られたラテックスとは異なる。即ち、気相重合、溶液重合、塊状重合等で得られたゴム又は合成ゴムを有機溶剤に溶解させ乳化分散液としたものである。特にラテックス重合に不向きな合成ゴムに好適である。好ましくはブチルゴム（IIR）である。このような特定のラテックスを用いることにより、無機フィラーの分散が良好となり、例えば無機フィラーとしてクレーを用いた場合、少量のクレーで優れたガスバリア性を發揮することができる。

【0018】上記のようにして得られる本発明のゴム組成物は、一般に水に浸漬した無機フィラーとゴムのラテックスとを混合し、水これを乾燥させることによって得られる。さらにこれに架橋剤を加えると、架橋ゴム組成物が得られる。

【0019】本発明で使用される無機フィラーとして

(3) 4

は、クレー、マイカ、カオリンクレー、タルク、炭酸カルシウム、シリカ等を挙げることができ、中でも形状が扁平状であるクレー、マイカ、カオリンクレー、タルクが好ましく、特にクレーが好ましい。無機フィラーの平均粒径は2μm以下、好ましくは1～0.01μmのが好ましい。

【0020】クレーとは、一般に、1種あるいは2種以上の粘土鉱物からなる平均粒径2μm以下、好ましくは1～0.01μmの微細な粒子である。粘土鉱物とは、2μm以下の微細な層状ケイ酸塩であり、 Si^{4+} イオンが酸化物イオン（ O^{2-} ）に対して4配位をとる4面体が構成する層と、 Al^{3+} 、 Fe^{2+} 、 Fe^{3+} 、 Mg^{2+} などのイオンが O^{2-} および水酸化物イオン（ OH^- ）に対して6配位をとる8面体層とが1：1あるいは2：1で結合し、さらにそれらが積み重なって層状構造を構成するものが、一般的である。粘土鉱物としては、例えば、カオリナイト、ハロイサイト、モンモリロナイト、セライト、バーミキュライトなどを挙げることができる。クレーの量は、ゴムに対して5～60質量%、特に5～40質量%、さらに5～30質量%が好ましい。クレーの量が1質量%より少ないと、気体遮蔽性の効果が充分に得られず、60質量%より多いと、分散が困難となり好ましくない。

【0021】上記クレーとして、有機化クレーを使用しても良い。有機化クレーとは、クレーに有機オニウムイオンをイオン結合させたものである。有機オニウムイオンは、炭素数6以上であることが好ましい。炭素数が6未満の場合には、有機オニウムイオンの親水性が高まり、変性ポリマーとの相溶性が低下するおそれがあるからである。上記有機オニウムイオンとしては、たとえば、ヘキシルアンモニウムイオン、オクチルアンモニウムイオン、2-エチルヘキシルアンモニウムイオン、ドデシルアンモニウムイオン、ラウリルアンモニウムイオン、オクタデシルアンモニウムイオン、ステアリルアンモニウムイオン、ジオクチルジメチルアンモニウムイオン、トリオクチルアンモニウムイオン、ジステアリルジメチルアンモニウムイオン、又はラウリン酸アンモニウムイオン等を用いることができる。

【0022】本発明で使用されるゴムの乳化分散液は、下記のように製造される。例えば、合成ゴムを有機溶剤に溶解し、これをアルコール（例えばエチルアルコール、n-プロピルアルコール、イソプロピルアルコール、sec-ブチルアルコール又はtert-ブチルアルコールである）存在下に乳化し、有機溶剤、アルコールを除去することによりゴムの乳化分散液を得る。上記合成ゴム有機溶剤溶液を、上記アルコールを含む乳化剤含有水溶液に分散させ、有機溶剤を留去することが好ましい。また乳化の際は一般に乳化剤等が使用される。

【0023】上記ゴムの例として、例えば天然ゴム、スチレンブタジエンゴム（SBR）、ブタジエンゴム、イ

ソプレンゴム、アクリロニトリルーブタジエンゴム（NBR）、クロロプレンゴム、ブチルゴム（IIR）、エチレン-プロピレンゴム、アクリルゴム、クロロスルホン化ポリエチレンゴム、フッ素ゴムラテックス、シリコーンゴムラテックス、ウレタンゴムラテックスが挙げられる。アクリロニトリルーブタジエンゴム（NBR）、スチレンブタジエンゴム（SBR）、ブチルゴム（IIR）が好ましく、特にブチルゴム（IIR）が好ましい。ブチルゴム（IIR）は一般にイソブチレンと少量のイソブレンとの共重合体であり、ハロゲン化されたタイプもある。

【0024】上記合成ゴムは、通常の気相重合法、溶液重合法、塊状重合法等の重合手法を用いることにより得られる。上記ゴムに加えて、通常の熱可塑性樹脂等のポリマーを併用しても良い。

【0025】上記ゴムの乳化分散液と、クレーの水スラリーを混合する際、水溶性アミノシラン系カップリング剤を添加することが好ましい。水溶性アミノシラン系カップリング剤は、一般にアミノ基を含有するアルコキシランのうち水溶性であるものである。水溶性であるために、クレー水スラリーに均一に混合することができる。水溶性アミノシラン系カップリング剤を添加することで、クレー水スラリーとゴムラテックスの混合物がペースト状となり、乾燥時間が大幅に短縮される。また乾燥後の固体状ゴム組成物のロール作業の作業性が大幅に改良される。水溶性アミノシラン系カップリング剤として、例えばN-β（アミノエチル）γ-アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N-β（アミノエチル）γ-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-β（アミノエチル）γ-アミノプロピルトリエトキシシラン、γ-アミノプロピルトリメトキシシラン及びγ-アミノプロピルトリエトキシシランが挙げられる。水溶性アミノシラン系カップリング剤の使用量は、添加後の組成物がペースト状になる量であればよく、ゴム分100gに対して、0.5～8mlが好ましく、特に1～6mlが好ましく、さらに2～5mlが好ましく、通常3mlである。水溶性アミノシラン系カップリング剤の量が0.5mlより少ないと、添加後の組成物が、ペースト状とならず、その後の処理（乾燥、ロール作業）を良好に行なうことができない。8mlより多くても、組成物をペースト状にする効果が向上しないばかりか、例えば気体の遮蔽効果が低下するなど、得られた組成物の物性に悪影響を与える。

【0026】架橋を行なうための架橋剤としては、種々の市販の化合物を使用することができ、ジエン系ゴムに関しては有機過酸化物が好ましい。有機過酸化物として、例えば、過酸化水素水、クメンヒドロペルオキシド、ジ-*t*-ブチルペルオキシド、*t*-ブチルクミルペルオキシド、ジクミルペルオキシド、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ-*t*-ブチルペルオキシヘキサン、

1, 3-ビス（*t*-ブチルペルオキシソプロピル）ベンゼン、n-ブチル-4, 4-ビス（*t*-ブチルペルオキシ）バレート、1, 1-ビス（*t*-ブチルペルオキシ）-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン、2, 2-ビス（*t*-ブチルペルオキシ）ブタン、ベンゾイルペルオキシド、p-クロロベンゾイルペルオキシド、2, 4-ジクロロベンゾイルペルオキシド、*t*-ブチルペルオキシベンゼン、ビニルトリス（*t*-ブチルペルオキシ）シランなどを使用することができる。過酸化水素水が好ましい。使用量は、ゴムに対して、0.2～1.0質量%、特に0.25～0.8質量%、さらに0.3～0.5質量%が好ましい。

【0027】本発明のゴム組成物を得るために、例えば、まず無機フィラーを水に浸漬し、攪拌する。水の量は、無機フィラーが水に分散し、攪拌が容易になる量であればよく、例えばクレーの場合、通常20gのクレーに対して、総容積が800～1200ml、好ましくは900～1100mlになる量である。攪拌には、スターラーミキサーなどの汎用の混合機を用いることができる。攪拌時間は、無機フィラーが水に充分浸漬する時間であればよく、無機フィラーの量にもよるが、通常12～36時間である。

【0028】次いで得られた無機フィラー水スラリーと、ゴムの乳化分散液とを混合する。ゴムの乳化分散液との混合は、スターラーミキサーなどの汎用の混合機を用いることができる。混合は、ラテックスが変質しない限りの高温で行なうこともできるが、室温が好ましい。混合時間は、無機フィラー水スラリーとゴムの乳化分散液が均一に混合される時間であればよく、無機フィラーの量にもよるが、通常5～15分間である。

【0029】次いで無機フィラー水スラリーとゴムの乳化分散液との混合物に、特にクレーの場合、水溶性アミノシラン系カップリング剤を添加しても良い。水溶性アミノシラン系カップリング剤の量は、添加後の混合物がペースト状になる量であればよい。混合物がペースト状となると、その扱いが容易となり、また次の工程の乾燥が速くなり、ロール作業性が良好となる。

【0030】攪拌後、混合物を60～100℃、好ましくは80℃の恒温槽中に保管し、18～48時間、好ましくは24時間乾燥し、ゴム組成物を得る。このゴム組成物に適当な過酸化物をロールを用いて添加し、適当な条件下で架橋して架橋ゴム組成物を得る。

【0031】本発明のゴム組成物は、その気体遮蔽性を生かして、ホース、ガスケット、パッキング材等に有利に使用される。

【0032】

【実施例】以下実施例により本発明を詳細に説明する。本発明は実施例に限定されるものではない。

【0033】【実施例1】

(1) ブチルゴムの乳化分散液の作製

臭素化ブチルゴム（商品名；ポリサーX2、バイエル社製、臭素含有量1.8wt%、残存二重結合量0%）30gをトルエン270gに溶解後、オレイン酸1.5gを添加した。別に、イソプロピルアルコール60gと水90gに、水酸化カリウム0.3gと、ジオクチルスルホコハク酸ナトリウム0.6gを溶かした溶液を作製した。これらの二つの溶液をTKホモミキサー（M型、特殊機化工業社（株）製）を用いて回転数12000rpmで2分間攪拌混合し乳化した。この乳化液を減圧下、加熱することにより、トルエン及びイソプロピルアルコールを留去し、ブチルゴムのラテックス（固形分4.6wt%）を得た。得られたラテックスの平均粒子径は0.8μmであり、相分離がなく静置安定性に優れたものであった。

【0034】（2）ゴム組成物及びシートの作製
20gのクレー（クニミネ工業（株）製：クニゲル）を蒸留水に浸漬し1000mlとして、汎用のスターラーミキサーで24時間攪拌して、クレー水スラリーを得た。このスラリーと218gの上記（1）のラテックスとを混合し、スターラーミキサーを用いて約10分間攪拌し、均一な混合物を得る。

【0035】得られた混合物を、60cm×25cm、深さ5cmの容器に取り出し、80℃のファン付き恒温槽中で24時間乾燥し、ゴム組成物を得た。これに1.5gのジクミルペルオキシドをロールを用いて添加し、ゴム圧延用ロールを用いて加硫しながら圧延処理する。得られた圧延シートを表面が十分平滑なスラブシート用金型を用いて160℃、30分の条件下において架橋させ、1mm厚のスラブシートサンプルを得る。

【0036】[実施例2]実施例1において、クレー水スラリーを500ml使用した以外と同様にしてゴム組成物及びシートを製造した。

【0037】[実施例3]実施例1において、クレーの代わりに水膨潤性合成マイカ（商品名ME-100、コー*

* プケミカル（株）製）を使用した以外と同様にしてゴム組成物及びシートを製造した。

【0038】[参考例1]実施例1において、クレーを使用しなかった以外は同様にしてゴム組成物及びシートを製造した。

【0039】[比較例1]実施例1において、ブチルゴムの乳化分散液を使用せず、通常のブチルゴム有機溶剤溶液（シクロヘキサン溶液）を用いてゴム組成物を作製した以外は同様にしてゴム組成物及びシートを製造した。

10 【0040】<評価方法>

1) 分散性評価

公知の多くの文献によれば、クレーがナノメーターレベルの大きさの微粒子となるように配合物に極めて微細に分散できれば、配合物の透明性が良好となることが知られている。そこで、透明性評価を分散性評価の代替評価として使用する。

【0041】得られた1mm厚のスラブシートとアクリル樹脂製の透明な定規を重ねておいて、30Wの光源の透過光を見たときに、このシートを通して定規の1mm幅線が判別可能なものを○、判別不能なものを×とした。

【0042】2) ロール作業性評価

直径10インチロール2本からなるカレンダーロール機を用いてロール作業を行い、作業性の良いものを○、作業性が悪いものを×として判断した。

【0043】3) 気体遮蔽性（ガスバリヤ性）

気体遮蔽性を評価するため、GTRテック（株）製ガス透過試験機（GTR30A、ガス：フロンR134a）を用い、100℃、ガス供給側圧力0.2MPaの差圧法により気体透過測定を行なった。ポリマー（参考例1）に対するサンプルの気体透過率の比として表した。

【0044】

【表1】

表1

| | 実施例1 | 実施例2 | 実施例3 | 参考例1 | 比較例1 |
|--------|------|------|------|------|------|
| 分散性 | ○ | ○ | ○ | — | × |
| ロール作業性 | ○ | ○ | ○ | — | × |
| 気体遮蔽性 | 0.34 | 0.43 | 0.39 | 1.00 | — |

【0045】以上示したように、本発明の例え実施例1では、クレーを含有しない場合よりもガス透過率が6.6%も減少した。また分散性、作業性も、比較例に比べて良好であった。

【0046】

【発明の効果】本発明の方法により得られるゴム組成物では、極めて微粒化され、分散安定性に優れたゴムの乳

化分散液を用いて無機フィラーが分散されている。このため無機フィラーがゴム微粒子中に極めて微細に分散されることになり、少量の無機フィラーにより優れたガスバリヤ効果、機械特性（粘弾性等）の向上効果を発揮する。また無機フィラーを大量に使用しないため、ロール作業性がよく、乾燥も短縮することができる。特にこのような効果は、無機フィラーとしてクレーを用いた場合

に大きくなる。

フロントページの続き

| | | | |
|----------------------------|-------|---------|------------|
| (51) Int. Cl. ⁷ | 識別記号 | F I | マークコード(参考) |
| C 0 8 L | 9/00 | C 0 8 L | 9/00 |
| | 23/22 | | 23/22 |
| F 1 6 J | 15/10 | F 1 6 J | 15/10 |
| | | | Y |

| | | |
|----------------------|--------------------------------|----------------------|
| (72) 発明者 真下 成彦 | F ターム(参考) | 3J040 FA06 HA01 HA02 |
| 神奈川県横浜市戸塚区戸塚町2810-2- | 4F070 AA05 AA07 AA08 AA12 AB16 | |
| 307 | AC27 CA01 CA20 CB05 CB12 | |
| | 4J002 AC011 AC071 AC081 BB151 | |
| | BB181 BB271 BD121 BG041 | |
| | CK001 CP031 DE236 DJ016 | |
| | DJ036 DJ046 DJ056 FA016 | |
| | FB146 FD016 FD140 FD206 | |
| | GM00 GT00 HA08 | |